

H14/A08 K₃Li₂Nb₅₀<15>単結晶とリラクサーチ タン酸鉛系単結晶の超音波マイクロスペクトロスコ ピー(共同プロジェクト研究)

雑誌名	東北大学電気通信研究所研究活動報告
巻	9
ページ	160-161
発行年	2003-07
URL	http://hdl.handle.net/10097/30357

課題番号 H14/A08

K₃Li₂Nb₅O₁₅単結晶とリラクサーチタン酸鉛系単結晶の超音波マイクロスペクトロスコピー

[1] 組織

代表者：櫛引 淳一

(東北大学大学院工学研究科)

責任者：長 康雄

(東北大学電気通信研究所)

分担者：安達 正利

(富山県立大学)

研究費：校費29万1千円，旅費48万1千円

[2] 研究経過

本代表研究者らは、物質・材料表面の音響特性を非接触的・非破壊的に定量計測できる直線集束ビーム (Line-Focus-Beam: LFB) 超音波材料解析システムを基本とした「超音波マイクロスペクトロスコピー (Ultrasonic Micro-Spectroscopy: UMS) 技術」に関する基礎研究および応用開発研究を進めている。本プロジェクトでは、オプトエレクトロニクスや弾性表面波 (SAW) エレクトロニクス材料としてのK₃Li₂Nb₅O₁₅単結晶や医用超音波診断装置の超音波プローブ用リラクサー系単結晶の開発研究に応用するもので、東北大学と富山県立大学の共同研究である。

本プロジェクトは、本年度が第1年度であった。以下、研究活動状況を記す。

本年度は以下の日程で、研究打合せ、実験及び討論を行い、研究会に発表した。

打合せ、実験及び討論：

- (1) 平成14年12月16日～17日：
安達正利教授 (富山県立大学)
- (2) 平成15年1月21日～24日：
安達正利教授，唐木智明助教授 (富山県立大学)
- (3) 平成15年2月26日～29日：
安達正利教授 (富山県立大学)
- (4) 平成15年3月5日～7日：
唐木智明助教授 (富山県立大学)
- (5) 平成15年3月24日～26日：
安達正利教授 (富山県立大学)

研究発表：

- (1) 平成15年2月28日：圧電材料・デバイスシンポジウム2003 (東北大学工学部青葉記念会館，仙台)
安達正利教授 (富山県立大学)

[3] 成果

(3-1) 研究成果

本年度は、以下に示す研究の成果を得た。

1. K₃Li_{2-x}Nb_{5+x}O_{15-2x} (KLN) 単結晶の育成と評価

従来から連続充填チョクラルスキー法によりKLN単結晶の育成を行ってきた。二重坩堝の使用および充填原料の形態を考えることにより、連続充填引き上げ法を確立してきた。通常のチョクラルスキー (CZ) 法と本連続充填法で得られた試料の相転移温度を熱分析法で調べた。連続充填法で得られた約2 gの結晶の育成方向の相転移温度の変化は1℃である。組成に換算すると+0.01mol%のNb組成の変化であり、通常のCZ法よりはるかに組成変動が制御されている。化学量論比組成に近づくとも結晶の異方性は増し圧電性は向上するが、結晶育成は非常に困難になる。来年度は実用化に向けて、大型かつ良質の結晶を育成することが課題である。

2. TSSG法によるインジウムニオブ酸鉛 - マグネシウムニオブ酸鉛 - チタン酸鉛3成分系圧電単結晶の育成

TSSG法によりPIMNT単結晶の育成を行った結果、次のことが明らかになった。

- フラックスPbO-B₂O₃を用いて、引き上げ速度：0～0.2 mm/hの育成条件のもと、PIMNT結晶を得ることができる。
- 得られる結晶組成と仕込み組成に変動が生じる。
- 仕込み組成を調整することにより、 $T_c > 200^\circ\text{C}$ ， $T_r > 100^\circ\text{C}$ 有するPIMNT単結晶を育成することができる。
- 来年度は、LFBまたは超音波顕微鏡を用いて結晶の組成変動を評価したい。

3. ランガサイト系 $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ 単結晶の育成

RFチヨクラルスキー法で $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ (CNGS)単結晶育成が行われた。用いた白金製るつぼは直径および高さが50mmのものを使用した。単結晶の引き上げ軸はX, Y, Z軸に平行な方向に選ばれている。引き上げ速度および回転速度は、それぞれ、0.2 and 1.5mm/h, および 10 から 20rpmであった。Z軸引き上げは、他の方向に比べて成長速度が極端に遅く、非常に結晶育成が困難であった。そのため、引き上げ軸はXまたはY軸に平行となるように選ばれている。得られた結晶は(001)面がよく発達した平板状のもので、幅30mm, 長さ50mm程度の無色透明な結晶である。その融点は1325℃である。格子定数 a と c は, XRD測定の結果0.811 と 0.4979nmであった。密度はアルキメデス法から 4120kg/m^3 と求まった。誘電率 ϵ_{11}^T と ϵ_{33}^T は17.6と29であった。弾性定数 s_{11}^E と s_{44}^E は, 9.09 と $22.8 \times 10^{-12}\text{m}^2\text{N}^{-1}$, c_{33}^E および c_{44}^E は22.6と $4.05 \times 10^{10}\text{Nm}^{-2}$ となった。電気機械結合係数 k_{12} および k_{25} は10.9と17.4%となった。

(3-2) 波及効果と発展性など

本研究は、UMS技術を新世代の高品質強誘電体単結晶の育成開発に応用する初めての共同研究である。将来、エレクトロニクス研究分野においては、研究者が新しい理想的な単結晶基板を入手できるようになることを意味し、その効果は計り知れないものがある。また、本研究成果は材料研究の学術・産業分野において「材料解析・評価の基盤技術に対する新たな目標とスタンダード」を与えることができ、新しい材料評価技術としてのUMS技術と新高品質単結晶の実用化を促すことができるだろう。

[4] 成果資料

- (1) Masatoshi Adachi, Mayumi Nakatsuji and Tomoaki Karaki, "Piezoelectric Properties of Potassium Lithium Niobate Single Crystals", *Ferroelectrics*, Vol. 262, pp. 257-262 (2001).
- (2) Tomoaki Karaki, Masatoshi Adachi, Yasuhara Hosono and Yohachi Yamashita, "Distribution of Piezoelectric Properties in $\text{Pb}[(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.93}\text{Ti}_{0.07}]\text{O}_3$ ", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 41, No. 4A, pp. L402-L404 (2002).
- (3) Masatoshi Adachi, Yuzuru Sawada, Takeo Funakawa and Tomoaki Karaki, "Growth of Langasite Family Compounds for Bulk and SAW Applications", *Ferroelectrics*, Vol. 273, pp. 89-94 (2002).
- (4) Tomoaki Karaki, Maki Nakamoto and Masatoshi Adachi, "Top-Seeded Solution Growth of $\text{Pb}[(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})_{0.93}\text{Ti}_{0.07}]\text{O}_3$ Single Crystals", *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 41, No. 11B, pp. 6997-6999 (2002).
- (5) 安達 正利, 唐木 智明, 櫛引 淳一, 荒川 元孝, "ランガサイト系 $\text{Ca}_3\text{NbGa}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ 単結晶の育成", 圧電材料・デバイスシンポジウム2003, 東北大学, 2003, pp.47-50.